

Weakly magnetic solid solution powder useful for transformers, chokes, and molded in electrical machines has high frequency stable initial permeability combined with high saturation flow density and low eddy current losses

Publication number: DE19908374

Publication date: 2000-09-07

Inventor: KEMMESIES MATTHIAS (DE); WILMESMEIER
HEINRICH (DE)

Applicant: WIDIA GMBH (DE)

Classification:

- International: *H01F1/153; H01F3/08; H01F1/12; H01F3/00; (IPC1-7):*
H01F1/26; H01F3/08

- European: H01F1/153R2B

Application number: DE19991008374 19990226

Priority number(s): DE19991008374 19990226

Report a data error here

Abstract of **DE19908374**

Solid solution particles in a thermoplastic plastic matrix with embedded soft magnetic alloy particles are new. Solid solution particles in a thermoplastic plastic matrix have embedded soft magnetic alloy particles of formula: $(\text{Fe}_{1-a}\text{Ma})_{100-x-y-z}\text{CuxSiyBzM}^{\alpha}$ where M = cobalt and/or nickel and M is at least one of Nb, W, Ta, Zr, Hf, or Mo, where a, x, y, z, and alpha obey the condition: and $0.1 \leq a \leq 0.5$, $0.1 \leq x \leq 3$, $0 \leq y \leq 30$, $0 \leq z \leq 25$, $5 \leq y+z \leq 30$, $0.1 \leq \alpha \leq 30$ and at least 50% of the alloy particles have a nanocrystalline structure.

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide



①⑨ **BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND**



**DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT**

①② **Offenlegungsschrift**
⑩ **DE 199 08 374 A 1**

⑤① Int. Cl.⁷:
H 01 F 1/26
H 01 F 3/08

②① Aktenzeichen: 199 08 374.6
②② Anmeldetag: 26. 2. 1999
④③ Offenlegungstag: 7. 9. 2000

DE 199 08 374 A 1

⑦① Anmelder:
Widia GmbH, 45145 Essen, DE

⑦④ Vertreter:
Vomberg, F., Dipl.-Phys., Pat.-Anw., 42653 Solingen

⑦② Erfinder:
Kemmesies, Matthias, 45657 Recklinghausen, DE;
Wilmesmeier, Heinrich, Dr.rer.nat., 45472 Mülheim,
DE

⑤⑥ **Entgegenhaltungen:**

DE	196 08 891 A1
DE	44 06 060 A1
DE	39 09 747 A1
DE	31 20 169 A1
US	49 23 533
US	41 97 146
EP	02 05 786 A1
EP	01 75 535 A1
EP	01 12 577 A1

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤④ **Weichmagnetischer Pulververbundwerkstoff**

⑤⑦ Die Erfindung betrifft einen Teilchenverbundwerkstoff aus einer thermoplastischen Kunststoffmatrix mit eingelagerten weichmagnetischen Partikeln einer Legierung, welche die Zusammensetzung der Form $(\text{Fe}_{1-a}\text{M}_a)_{100-x-y-z-\alpha}\text{Cu}_x\text{Si}_y\text{B}_z\text{M}'_\alpha$ aufweist, wobei M Cobalt und/oder Nickel und M' mindestens eines der Elemente Nb, W, Ta, Zr, Hf, Ti und Mo ist sowie a, x, y, z und α jeweils die Bedingung $0 \leq a \leq 0,5$, $0,1 \leq x \leq 3$, $0 \leq y \leq 30$, $0 \leq z \leq 25$, $5 \leq y + z \leq 30$ und $0,1 \leq \alpha \leq 30$ erfüllen und wobei mindestens 50% der Legierungspartikel eine nanokristalline Struktur aufweisen.
Erfindungsgemäß wird vorgeschlagen, daß der durch Spritzgießen geformte Verbundkörper weichmagnetische Partikel einer Dicke von 5 bis 50 μm und Querschnittflächen von 0,05 bis 0,10 mm^2 aufweist.

DE 199 08 374 A 1

Die Erfindung beschreibt einen Teilchenverbundwerkstoff aus einer thermoplastischen Kunststoffmatrix mit eingela-
 5 gerten weichmagnetischen Partikeln einer Legierung, welche die Zusammensetzung der Form $(\text{Fe}_{1-a}\text{Ma})_{100-x-y-z-\alpha}\text{Cu}_x\text{Si}_y\text{B}_z\text{M}'_\alpha$ aufweist, wobei M Cobalt und/oder Nickel und M' mindestens eines der Elemente Nb, W, Ta, Zr, Hf, Ti und Mo
 ist sowie a, x, y, z und α jeweils die Bedingung $0 \leq a \leq 0,5$, $0,1 \leq x \leq 3$, $0 \leq y \leq 30$, $0 \leq z \leq 25$, $5 \leq y+z \leq 30$ und
 $0,1 \leq \alpha \leq 30$ erfüllen und wobei mindestens 50% der Legierungspartikel eine nanokristalline Struktur aufweisen.

Die beispielsweise aus der EP 0 299 498 B1 bekannte Legierung dieser Zusammensetzung weist eine hohe Sätti-
 gungsmagnetdichte, eine ausgezeichnete Permeabilität und geringe Kernverluste im Hochfrequenzbereich auf.

10 Weiterhin wird in der EP 0 299 498 B1 eine entsprechende Legierungszusammensetzung angegeben, die zusätzlich
 wenigstens eines der Elemente V, Cr, Mn, Al, Sc, Y, Au, Zn, Sn, Re und/oder Elemente der sogenannten Platingruppe
 oder der Seltenerdmetalle des Periodensystemes sowie mindestens eines der Elemente C, Ge, P, Ga, Sb, In, Be und As
 aufweist. Der Anteil sowohl der erstgenannten als auch der zweitgenannten Gruppe von Elementen soll jedoch 10 M%
 der Gesamtmasse der Legierung nicht überschreiten. Auch diese weichmagnetische Legierungszusammensetzung soll
 15 von der vorliegenden Erfindung abgedeckt werden.

Aus der genannten europäischen Patentschrift ist es weiterhin bekannt, durch Schmelzspinteknik (rasches Abschrek-
 ken einer Schmelze der genannten Zusammensetzung) eine amorphe Legierung in Bandform auszubilden, das amorphe
 Band zu einem Ringbandkern zu wickeln und diesen zur Bildung feiner kristalliner Teilchen einer Wärmebehandlung zu
 unterziehen. Die mittlere Teilchengröße soll jedoch maximal 100 nm betragen. Die Wärmebehandlung der amorphen Le-
 20 gierung soll 5 min bis 24 h dauern und bei 450°C bis 700°C unter Schutzgas (z. B. N₂, Ar), Wasserstoff (H₂) oder Va-
 kuum, ggf. in einem Magnetfeld durchgeführt werden. Die so gefertigten Magnetkerne sollen dann in einer Drossel oder
 in einem Transformator verwendet werden.

Auch die EP 0 302 355 B1 geht von einem entsprechenden weichmagnetischen Legierungspulver aus, bei dem min-
 destens 50% der Legierungsstruktur feinkristalline Partikel mit einer mittleren Partikelgröße von 50 nm oder weniger
 25 sind. Die Pulverpartikel sollen in Form feiner Flocken mit einer Partikelgröße von weniger als 5 mm bei einer im we-
 sentlichen gleichförmigen Dicke von weniger als 100 µm oder im wesentlichen in Form von Kugeln vorliegen, die eine
 Partikelgröße von 200 µm oder weniger aufweisen, gemessen längs des maximalen Durchmessers. In dieser Druckschrift
 wird auch das Zusammenpressen eines feinen Pulvers aus der genannten weichmagnetischen Legierung mit einem Bin-
 demittel und/oder einem elektrischen Isoliermaterial vorgeschlagen, das mittels einer axial arbeitenden Presse durchge-
 30 führt wird.

Schließlich wird in der EP 0 400 550 A2 vorgeschlagen, ein Pulver aus einer entsprechenden Legierung in einer Bin-
 der-Matrix aus Thermoplasten, Duroplasten oder sonstigen Kunststoff einzulagern, wobei der Füllgrad, d. h. der Anteil
 der magnetischen Legierung an dem Gesamtverbundkörper aus magnetischer Legierung und dem Kunststoff, 60 bis
 95 Gew.-%, vorzugsweise 70 bis 90 Gew.-%, betragen soll. Der betreffende Verbundkörper soll als magnetische Ab-
 35 schirmung eingesetzt werden.

Weitere Beispiele für Zusammensetzungen weichmagnetischer Legierungen, von denen die vorliegende Erfindung
 ausgeht, werden in der DE 42 30 986 A1 genannt.

Es ist Aufgabe der vorliegenden Erfindung, einen Verbundwerkstoff der eingangs genannten Art zu schaffen, der eine
 hohe, frequenzstabile Anfangspermeabilität bei gleichermaßen hoher Sättigungsflußdichte, geringer Koerzitivfeldstärke
 40 und niedrigen Wirbelstromverlusten besitzt. Ferner soll ein Verfahren zur Herstellung dieser Legierung sowie eine Ver-
 wendung angegeben werden.

Diese Aufgabe wird bei einem Verbundkörper der eingangs genannten Art dadurch gelöst, daß der durch Spritzgießen
 geformte Verbundkörper nanokristallin strukturierte weichmagnetische Partikel der vorstehend erwähnten und nach dem
 Stand der Technik grundsätzlich bekannten Legierungszusammensetzung mit einer Dicke von 5 bis 50 µm, vorzugsweise
 45 von 10 bis 30 µm und Querschnittsflächen von 0,05 bis 10 mm² aufweist. Überraschenderweise hat sich herausgestellt,
 daß die Kombination dieser beiden Maßnahmen, nämlich die Wahl der Partikelgröße als auch das Formen der Mischung
 aus Kunststoff und weichmagnetischen Partikeln durch Spritzgießen, zu einer erheblichen Steigerung der Anfangsper-
 meabilität führt. So weisen nach dem Stand der Technik durch Spritzgießen hergestellte Verbundkörper mit weichferri-
 tischen Partikeln bei vergleichbaren Füllgraden lediglich Anfangspermeabilitäten zwischen 10 und 20 bei z. B. 10 kHz
 50 auf (vgl. Datenblatt S + M Siemens Matsushita Components, "Ferrite und Zubehör", C301, C302, C303 oder
 EP 0 558 178 B1), wohingegen mit dem erfindungsgemäßen Verbundkörper Anfangspermeabilitäten bei 10 kHz von
 mindestens 30 gemessen wurden.

Im allgemeinen liegt der Volumenanteil (Füllgrad) der weichmagnetischen Partikel bezogen auf das Gesamtvolumen
 zwischen 40 und 65%, vorzugsweise bei 55 Vol.-%.

55 Als Kunststoffmatrix wird bevorzugt ein Polyamid (PA) oder ein Polyphenylsulfid (PPS) verwendet.

Zur Herstellung des erfindungsgemäßen Verbundkörpers wird in grundsätzlich nach dem Stand der Technik bekannter
 Weise eine spritzfähige Mischung aus einem thermoplastischen Kunststoff und nanokristallin strukturierten weichma-
 gnetischen Partikeln der angegebenen Größe hergestellt, die dann anschließend zu einem Formkörper durch Spritzgießen
 umgeformt wird. Der Vorteil des Spritzgießens liegt insbesondere in der kostengünstigen Herstellung, die zudem weitaus
 60 mehr Gestaltungsmöglichkeiten als das axiale Pressen liefert. Zum Spritzgießen können die Verfahren und Spritzgieß-
 maschinen verwendet werden, mit denen Thermoplaste verarbeitet werden. Solche Spritzgießmaschinen bestehen haupt-
 sächlich aus einer Plastifiziereinheit, einem Formschließaggregat und dem Antrieb sowie der Steuerung.

Die Mischung aus einem Kunststoff-Granulat oder -Pulver, ggf. unter Zusatz von Stabilisatoren und Gleitmitteln, wird
 zusammen mit den weichmagnetischen Partikeln gemischt und durch Misch- und Knetextrudieren zu einem Compound
 65 verarbeitet. Das insbesondere durch Extrusion hergestellte Halbzeug kann dann nach Mahlen zu einem Granulat in die
 erwähnte Plastifiziereinheit gegeben werden, worin die Kunststoff-Formmasse durch Erwärmen und Verdichten plastifi-
 ziert und homogenisiert wird, wonach sie in den vorgesehenen Formhohlraum eingespritzt wird.

Als Ausgangsmaterial für die Herstellung der weichmagnetischen Partikel (sogenannte Band- oder Pulverflitter) kann

auf das beispielsweise in der EP 0 302 355 B1 beschriebene Verfahren zurückgegriffen werden, wonach eine Schmelze der angegebenen Legierungszusammensetzung rasch abgeschreckt wird, um eine amorphe Legierung in Form eines Bandes, einer Flocke oder eines Schuppens oder eines Drahtes zu bilden. Nach einer anschließenden Wärmebehandlung (Kristallisationsglühen) erfolgte das Mahlen zu den erfindungsgemäß aufgeführten Partikelgrößen. Die verwendeten Bänder, Drähte oder sonstigen Formen müssen nicht gleichmäßig dick sein, es kann auch sogenanntes poröses löcheriges Material, das ansonsten nicht mehr verwertbar ist, weiterverarbeitet werden. Auch die direkte Herstellung von nanokristallinen Pulvern durch Rascherstarrung ist möglich. Ggf. können die nanokristallinen Bänder, Drähte oder Pulver noch einem Entspannungsglühen bei Temperaturen $< 450^{\circ}\text{C}$ unterzogen werden.

Bevorzugte Verwendungsbereiche der erfindungsgemäßen Verbundkörper sind Transformatoren, Übertrager und Drosseln sowie als Formteil zur magnetischen Flußführung in elektrischen Maschinen.

In einem konkreten Ausführungsbeispiel der Erfindung wurde eine rascherstarrte amorphe weichmagnetische Legierung mit (jeweils Atom%) 1% Cu, 15,5% Si, 7,8% B, 3,0% Nb, Rest Eisen in Bandform einer Kristallisationsbehandlung von 3 h bei 535°C unter Stickstoff unterzogen. Das derart behandelte Band wurde anschließend gemahlen, bis sich Bandflitter einer Größe ergaben, die eine Dicke von $23\text{ }\mu\text{m} \pm 6\text{ }\mu\text{m}$ und Querschnittsflächen von $0,05$ bis 10 mm^2 , gemessen jeweils in Draufsicht auf die größte Partikelfläche, aufwiesen. Unter Verwendung von PA als Kunststoff, wurde ein Gemisch aus 53,3 Vol-% Flitter mit 2,4 Vol-% Gleitmittel durch Warmkneten compoundiert. Anschließend wurde das Compound zu einem Granulat vermahlen und in bekannter Art und Weise durch Spritzgießen zu Ringen verarbeitet. Die erreichten magnetischen Eigenschaften sind in nachfolgender Tabelle im Vergleich zum Stand der Technik dargestellt.

	Permeabilität μ_i (10 kHz)	statische Koerzitivfeld- stärke (H_c [A/m])	Flußdichte (nahe der Sättigung) B_g ($H=20\text{ kA/m}$)/mT	Verluste (10 kHz, 100mT) P_v [W/kg]
Weichferrischer Verbundwerkstoff	≈ 19	340	190	9,5
Eisenpulver Verbundwerkstoff	14	790	300	10,6
Erfindungsgemäßer Verbundwerkstoff	33	55	360	5,5

Patentansprüche

1. Teilchenverbundwerkstoff aus einer thermoplastischen Kunststoffmatrix mit eingelagerten weichmagnetischen Partikeln einer Legierung, welche die Zusammensetzung der Form $(\text{Fe}_{1-a}\text{M}_a)_{100-x-y-z-\alpha}\text{Cu}_x\text{Si}_y\text{B}_z\text{M}'_\alpha$ aufweist, wobei M Cobalt und/oder Nickel und M' mindestens eines der Elemente Nb, W, Ta, Zr, Hf, Ti und Mo ist sowie a, x, y, z und α jeweils die Bedingung $0 \leq a \leq 0,5$, $0,1 \leq x \leq 3$, $0 \leq y \leq 30$, $0 \leq z \leq 25$, $5 \leq y+z \leq 30$ und $0,1 \leq \alpha \leq 30$ erfüllen und wobei mindestens 50% der Legierungspartikel eine nanokristalline Struktur aufweisen, **dadurch gekennzeichnet**, daß der durch Spritzgießen geformte Verbundkörper weichmagnetische Partikel einer Dicke von 5 bis $50\text{ }\mu\text{m}$, vorzugsweise von 10 bis $30\text{ }\mu\text{m}$ und Querschnittsflächen von $0,05$ bis 10 mm^2 aufweist.
2. Teilchenverbundwerkstoff nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Volumenanteil (Füllgrad) der weichmagnetischen Partikel bezogen auf das Gesamtvolumen 40 bis 65 Vol.% beträgt.
3. Teilchenverbundwerkstoff nach einem der Ansprüche 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß der Kunststoff ein Polyamid oder ein Polyphenylsulfid ist.
4. Verfahren zur Herstellung eines Verbundkörpers nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß eine spritzfähige Mischung aus thermoplastischem Kunststoff und weichmagnetischen Partikel hergestellt und zu einem Formkörper durch Spritzgießen geformt wird.
5. Verfahren nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß die spritzfähige Mischung Gleitmittel enthält.
6. Verfahren nach einem der Ansprüche 4 oder 5, dadurch gekennzeichnet, daß die weichmagnetischen Partikel aus einem amorphen Bandmaterial nach Kristallisationsglühung durch Mahlen hergestellt worden sind.
7. Verfahren nach einem der Ansprüche 4 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die weichmagnetischen Partikel als Flocken durch Rascherstarrung direkt hergestellt worden sind.
8. Verwendung des Verbundkörpers nach einem der Ansprüche 1 bis 3 in Transformatoren, Drosseln und Übertragern sowie als Formteil zur magnetischen Flußführung in elektrischen Maschinen.

- Leerseite -